

特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告 (特許協力条約第二章)

(法第 12 条、法施行規則第 56 条)
[PCT 36 条及び PCT 規則 70]

REC'D 22 DEC 2005

WIPO

PCT

| | | |
|---|--------------------------------------|-----------------------------|
| 出願人又は代理人 の書類記号 200411F-0425 | 今後の手続きについては、様式 PCT/IPEA/416 を参照すること。 | |
| 国際出願番号 PCT/JP2004/017106 | 国際出願日 (日.月.年) 17. 11. 2004 | 優先日 (日.月.年) 17. 11. 2003 |
| 国際特許分類 (IPC) Int.Cl. C01B39/46, B01J29/70, C07D201/04, 223/10 | | |
| 出願人 (氏名又は名称) 独立行政法人産業技術総合研究所 | | |

- この報告書は、PCT 35 条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。
法施行規則第 57 条 (PCT 36 条) の規定に従い送付する。
- この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 6 ページからなる。
- この報告には次の附属物件も添付されている。
 - ☒ 附属書類は全部で 9 ページである。
 - ☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT 規則 70.16 及び実施細則第 607 号参照)
 - ☐ 第 I 欄 4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙
 - ☐ 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。
配列表に関する補充欄に示すように、電子形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。
(実施細則第 802 号参照)

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- ☒ 第 I 欄 国際予備審査報告の基礎
- ☐ 第 II 欄 優先権
- ☐ 第 III 欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- ☒ 第 IV 欄 発明の単一性の欠如
- ☒ 第 V 欄 PCT 35 条(2) に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- ☒ 第 VI 欄 ある種の引用文献
- ☐ 第 VII 欄 国際出願の不備
- ☒ 第 VIII 欄 国際出願に対する意見

| | | | |
|---|--------------------------------|----|------|
| 国際予備審査の請求書を受理した日 20. 09. 2005 | 国際予備審査報告を作成した日 05. 12. 2005 | | |
| 名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号 | 特許庁審査官 (権限のある職員) 西山 義之 | 4G | 3129 |
| | 電話番号 03-3581-1101 | 内線 | 3416 |

様式 PCT/IPEA/409 (表紙) (2005 年 4 月)

第I欄 報告の基礎

1. 言語に関し、この予備審査報告は以下のものを基礎とした。

- ☒ 出願時の言語による国際出願
☐ 出願時の言語から次の目的のための言語である _____ 語に翻訳された、この国際出願の翻訳文
☐ 国際調査 (PCT規則12.3(a)及び23.1(b))
☐ 国際公開 (PCT規則12.4(a))
☐ 国際予備審査 (PCT規則55.2(a)又は55.3(a))

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-7, 10, 13-53 ページ、出願時に提出されたもの
 第 8, 9, 11, 11/1, 12 ページ*, 20.09.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 1-5, 7, 8, 12-14, 16-20, 22-43 項、出願時に提出されたもの
 第 _____ 項*, PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 第 6, 9-11, 15, 21 項*, 20.09.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ 項*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1-18 ページ/図、出願時に提出されたもの
 第 _____ ページ/図*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ/図*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☐ 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

第IV欄 発明の単一性の欠如

1. ☒ 請求の範囲の減縮又は追加手数料の納付命令書に対して、出願人は、規定期間内に、
- ☐ 請求の範囲を減縮した。
- ☐ 追加手数料を納付した。
- ☐ 追加手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、異議を申し立てた。
- ☐ 追加手数料の納付と共に異議を申し立てたが、規定の異議申立手数料を支払わなかった。
- ☒ 請求の範囲の減縮も、追加手数料の納付もしなかった。
2. ☐ 国際予備審査機関は、次の理由により発明の単一性の要件を満たしていないと判断したが、PCT規則68.1の規定に従い、請求の範囲の減縮及び追加手数料の納付を出願人に求めないこととした。
3. 国際予備審査機関は、PCT規則13.1、13.2及び13.3に規定する発明の単一性を次のように判断する。

☐ 満足する。

☒ 以下の理由により満足しない。

請求の範囲1-8, 10, 11, 15-21, 24, 25, 27-33, 39は、請求の範囲1に記載された特定の基本構造や粉末X線回折パターンを有する結晶性層状化合物、該結晶性層状化合物から製造されるゼオライト、該ゼオライトを用いた ϵ -カプロラクタムの製造方法に関するものである。請求の範囲9, 12-14, 22, 23, 26, 34-38, 40-43は、請求の範囲9や請求の範囲23に記載された化学組成や抽象的な幾何学的結晶構造を有するゼオライト、該ゼオライトを用いた ϵ -カプロラクタムの製造方法に関するものである。

これらは、一の発明であるとも、単一の一般的発明概念を形成するように連関している一群の発明であるとも認められない。

(後者の発明においては、請求の範囲1に記載された特定の結晶性層状化合物を用いることに由来するはずの技術的な特徴(粉末X線回折パターン等の特別な微細構造)が記載上限定されておらず、請求の範囲1-43は同一の技術的な特徴を有しているとはいえない。)

4. したがって、国際出願の次の部分について、この報告を作成した。

☐ すべての部分

☒ 請求の範囲 1-8, 10, 11, 15-21, 24, 25, 27-33, 39 に関する部分

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、
それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

| | | | |
|---------------|-------|---------------------------------------|---|
| 新規性(N) | 請求の範囲 | 1-8, 10, 11, 15-21, 24, 25, 27-33, 39 | 有 |
| | 請求の範囲 | | 無 |
| 進歩性(IS) | 請求の範囲 | 1-8, 10, 11, 15-21, 24, 25, 27-33, 39 | 有 |
| | 請求の範囲 | | 無 |
| 産業上の利用可能性(IA) | 請求の範囲 | 1-8, 10, 11, 15-21, 24, 25, 27-33, 39 | 有 |
| | 請求の範囲 | | 無 |

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1:JP 7-291620 A(水澤化学工業株式会社)1995. 11. 07

文献2:JP 2003-73115 A(独立行政法人産業技術総合研究所)2003. 03. 12

請求の範囲1-8, 10, 11, 15-21, 24, 25, 27-33, 39に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献1, 2に対して新規性、進歩性を有する。

文献1, 2には、請求の範囲1に記載された結晶性層状化合物や請求の範囲10に記載されたゼオライトが記載されておらず、しかもその点は当業者といえども容易に想到し得ないものである。

第VI欄 ある種の引用文献

1. ある種の公表された文書（PCT規則 70.10）

| 出願番号 特許番号 | 公知日 (日. 月. 年) | 出願日 (日. 月. 年) | 優先日 (有効な優先権の主張) (日. 月. 年) |
|---------------------------|------------------|------------------|------------------------------|
| JP 2004-175661 A 「E X」 | 24. 06. 2004 | 14. 11. 2003 | 14. 11. 2002 |
| JP 2004-339044 A 「E X」 | 02. 12. 2004 | 18. 11. 2003 | 25. 04. 2003 |

2. 書面による開示以外の開示（PCT規則 70.9）

| 書面による開示以外の開示の種類 | 書面による開示以外の開示の日付 (日. 月. 年) | 書面による開示以外の開示に言及している 書面の日付 (日. 月. 年) |
|-----------------|------------------------------|--|
|-----------------|------------------------------|--|

第Ⅷ欄 国際出願に対する意見

請求の範囲、明細書及び図面の明瞭性又は請求の範囲の明細書による十分な裏付についての意見を次に示す。

請求の範囲24には、「及び」という語により4種類の結晶構造を示すゼオライトが記載されているが、ある1つのゼオライトが4種類の結晶構造を同時に示すことはあり得ず、その記載内容が不明瞭である。したがって、請求の範囲24は明瞭に記載されていない。

| | |
|-------------------|-----|
| 3. 8 3 ± 0. 0 3 5 | v s |
| 3. 7 8 ± 0. 0 3 5 | w |
| 3. 6 7 ± 0. 0 3 5 | m |
| 3. 6 3 ± 0. 0 3 5 | s |
| 3. 6 0 ± 0. 0 3 5 | w |
| 3. 5 5 ± 0. 0 3 5 | m |
| 3. 5 1 ± 0. 0 3 5 | m |
| 3. 5 0 ± 0. 0 3 5 | v s |
| 3. 4 8 ± 0. 0 3 5 | v s |
| 3. 3 8 ± 0. 0 3 5 | m |
| 3. 3 4 ± 0. 0 3 5 | w |
| 3. 3 2 ± 0. 0 3 5 | s |

(表中、d は格子面間隔を表わす。また、w＝弱い相対強度、m＝中位相対強度、s＝強い相対強度、v s＝極めて強い相対強度を意味する。)

(2) 上記層状化合物において、S i－Oネットワーク中のS i原子周りのO原子の局所配位が3配位と4配位から構成される上記(1)記載の結晶性層状化合物。

(3) 上記層状化合物において、その結晶構造の層間空隙にアルカリ金属陽イオン及び有機結晶化調整剤を含む上記(1)記載の結晶性層状化合物。

(4) 上記層状化合物において、層間の有効空隙が3 Å以上となっている上記(1)記載の結晶性層状化合物。

(5) 上記層状化合物において、ケイ素5員環以上の骨格部位から構成される細孔を有する上記(1)記載の結晶性層状化合物。

(6) 結晶性層状化合物の原料組成物を有機結晶化調整剤の存在下で加熱することにより、化学組成 $[(S i_{18-x} \cdot O_{38}) \cdot M_y \cdot (TMA)_z \cdot (H_2O)_w]$ (式中、TMAはテトラアルキルアンモニウム陽イオン、MはNa、K、Li等のアルカリ金属陽イオンを表し、xは $0 \leq x \leq 1.2$ 、yは $0.5 \leq y \leq 1.5$ 、zは $6 \leq z \leq 8$ 、wは $0.02 \leq w \leq 1.5$ の範囲を表す。) で表される結晶性層状化合物を合成することを特徴とする結晶性層状化合物の製造方法。

(7) 上記(1)から(5)のいずれかに記載の結晶性層状化合物を合成する請求項6記載の結晶性層状化合物の製造方法。

(8) 有機結晶化調整剤が、テトラメチルアンモニウム塩、テトラエチルアンモニウム塩、テトラプロピルアンモニウム塩、テトラブチルアンモニウム塩などの四級アルキルアンモニウム塩及びアミン類から選ばれた少なくとも一種である上記(6)又は(7)記載の結晶性層状化合物の製造方法。

(9) 化学組成(結晶の構造組成)が $[(Si_{36-x}T_y \cdot O_{72}) \cdot M_z]$ (式中、MはLi, Na, K, Rb等のアルカリ金属陽イオン、Tは骨格置換元素としてAl, Ga, Fe, Ce原子を表し、xは $0 \leq x \leq 3.0$ 、yは $0 \leq y \leq 1.0$ 、zは $0 \leq z \leq 3.0$ の範囲を表す。)で表され、Si原子とO原子の共有結合からなる微細孔構造を有することを特徴とするゼオライト。

(10) 粉末X線回折パターンにおける格子面間隔d(Å)が少なくとも下記表8又は表9に記載されたものである上記(9)記載のゼオライト。

表 8

| d (Å) | 相対強度 |
|-------------|------|
| 9.17 ± 0.05 | 100 |
| 6.86 ± 0.05 | 35 |
| 6.11 ± 0.05 | 5 |
| 5.50 ± 0.05 | 4 |
| 4.84 ± 0.05 | 1 |
| 4.70 ± 0.05 | 1 |
| 4.58 ± 0.05 | 3 |
| 4.44 ± 0.05 | 7 |
| 4.35 ± 0.05 | 7 |
| 4.09 ± 0.05 | 6 |
| 3.88 ± 0.05 | 8 |
| 3.81 ± 0.05 | 9 |
| 3.68 ± 0.05 | 3 |
| 3.43 ± 0.05 | 25 |

| | |
|---------------|---|
| 1. 97 ± 0. 05 | 2 |
| 1. 86 ± 0. 05 | 2 |

(11) 結晶の格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 $Pnma$)、格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 $Pnnm$)、格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 14.74 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 $Pbcm$)、又は格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ 、 $\beta = 90 \pm 0.3^\circ$ の範囲にある単斜晶型 (空間群 $P21/m$) で結晶構造が記載可能な上記 (9) 記載のゼオライト。

(12) 骨格構造内における Si 原子周りの O 原子の局所配位が 4 配位から構成される上記 (9) 記載のゼオライト。

(13) Si 原子と O 原子の結合により構成される骨格構造が規則的な幾何学性を有する上記 (9) 記載のゼオライト。

(14) ガス吸着による平均細孔径が 0.48 nm 以上の細孔を有する上記 (9) 記載のゼオライト。

(15) 上記 (1) 記載の結晶性層状化合物又は骨格置換元素含有結晶性層状化合物を脱水重縮合することにより、化学組成が $[(Si_{36-x}T_y \cdot O_{72}) \cdot M_z]$ (式中、M は Li, Na, K, Rb 等のアルカリ金属陽イオン、T は骨格置換元素として Al, Ga, Fe, Ce 原子を表し、 x は $0 \leq x \leq 3.0$ 、 y は $0 \leq y \leq 1.0$ 、 z は $0 \leq z \leq 3.0$ の範囲を表す。) で表されるゼオライトを合成することを特徴とするゼオライトの製造方法。

(16) 脱水重縮合させる条件として、 $1 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^{-8} \text{ torr}$ の範囲における真空下にて製造される上記 (15) 記載のゼオライトの製造方法。

(17) 脱水重縮合させる加熱温度が $400 \sim 800^\circ \text{C}$ である上記 (15) 記載のゼオライトの製造方法。

(18) 脱水重縮合させる条件として、大気圧中で製造される上記 (15) 記載のゼオライトの製造方法。

(19) 脱水重縮合させる加熱温度が300～800℃である上記(15)記載のゼ
オライト

の製造方法。

(20) 加熱昇温温度が毎分 0.5～50℃である上記(15)記載のゼオライトの製造方法。

(21) 分子状の酸素分子を含んだ支燃性ガスの流通条件で脱水重縮合を行う上記(15)記載のゼオライトの製造方法。

(22) 上記(9)から(14)のいずれかに記載のゼオライトからなることを特徴とする触媒又は分離・吸着用部材。

[0024] 以下、本発明を、結晶性層状化合物、ゼオライトの順に図面を参照して説明する。この結晶性層状化合物を一般的に説明すると、図2及び図3に示す層状化合物は、Si-Oの4面体配位の繰り返し単位をシリケート基本構造に持ち、ケイ素5員環による微細孔がシリケート内に含まれている。そして、シリケート層間にイオン半径1.0オングストローム以上の陽イオン、また、直径3.0オングストローム以上の有機アミン類などの有機結晶化調整剤による層が介在して全体を構成している。

[0025] 本発明方法の原料である結晶性層状化合物は、シリカ源、イオン半径1.0オングストローム以上のアルカリ源、直径3.0オングストローム以上のアミン等の有機結晶化調整剤、及び溶媒からなる有機結晶化調整剤含有層状ケイ酸塩を合成する。シリカ源としては、好適には、例えば、SiO₂が使用されるが、これらに制限されるものではない。

[0026] 有機結晶化調整剤としては、層間内にアクセスできるものであり、層間を広げられる、またシリケート骨格構造を形成する鑄型としての作用を有するものであれば、従来公知のものが全て使用できる。例えば、テトラメチルアンモニウム塩、テトラエチルアンモニウム塩、テトラプロピルアンモニウム塩、テトラブチルアンモニウム塩などの四級アルキルアンモニウム塩及びアミン類、ホスホニウムイオン(R₄P⁺: Rは水素、炭素数10以下のアルキル基あるいはアリール基)などが挙げられる。本発明で好ましく使用される有機結晶化調整剤は、テトラメチルアンモニウム塩である。

[0027] また、この製造方法における反応成分とその反応モル比は、上記の目的とする前記一般式で表される、結晶性層状化合物の組成によって適宜定めればよい。

[0028] 原料を混ぜあわせてできるゾル・ゲル混合溶液からの結晶性層状化合物の反応プ

| | |
|-------------------|-----|
| 4. 0 0 ± 0. 0 4 | m |
| 3. 9 4 ± 0. 0 3 5 | s |
| 3. 8 5 ± 0. 0 3 5 | s |
| 3. 8 3 ± 0. 0 3 5 | v s |
| 3. 7 8 ± 0. 0 3 5 | w |
| 3. 6 7 ± 0. 0 3 5 | m |
| 3. 6 3 ± 0. 0 3 5 | s |
| 3. 6 0 ± 0. 0 3 5 | w |
| 3. 5 5 ± 0. 0 3 5 | m |
| 3. 5 1 ± 0. 0 3 5 | m |
| 3. 5 0 ± 0. 0 3 5 | v s |
| 3. 4 8 ± 0. 0 3 5 | v s |
| 3. 3 8 ± 0. 0 3 5 | m |
| 3. 3 4 ± 0. 0 3 5 | w |
| 3. 3 2 ± 0. 0 3 5 | s |

(表中、d は格子面間隔を表わす。また、w＝弱い相対強度、m＝中位相対強度、s＝強い相対強度、v s＝極めて強い相対強度を意味する。)

- [2] 上記層状化合物において、S i－Oネットワーク中のS i原子周りのO原子の局所配位が3配位と4配位から構成される請求項1記載の結晶性層状化合物。
- [3] 上記層状化合物において、その結晶構造の層間空隙にアルカリ金属陽イオン及び有機結晶化調整剤を含む請求項1記載の結晶性層状化合物。
- [4] 上記層状化合物において、層間の有効空隙が3 Å以上となっている請求項1記載の結晶性層状化合物。
- [5] 上記層状化合物において、ケイ素5員環以上の骨格部位から構成される細孔を有する請求項1記載の結晶性層状化合物。
- [6] (修正後) 結晶性層状化合物の原料組成物を有機結晶化調整剤の存在下で加熱することにより、化学組成 $[(Si_{18-x} \cdot O_{38}) \cdot M_y \cdot (TMA)_z \cdot (H_2O)_w]$ (式中、TMAはテトラアルキルアンモニウム

陽イオン、MはNa、K、Li等のアルカリ金属陽イオンを表し、 x は $0 \leq x \leq 1.2$ 、 y は $0.5 \leq y \leq 1.5$ 、 z は $6 \leq z \leq 8$ 、 w は $0.02 \leq w \leq 1.5$ の範囲を表す。)で表される結晶性層状化合物を合成することを特徴とする結晶性層状化合物の製造方法。

[7] 請求項1から5のいずれかに記載の結晶性層状化合物を合成する請求項6記載の結晶性層状化合物の製造方法。

[8] 有機結晶化調整剤が、テトラメチルアンモニウム塩、テトラエチルアンモニウム塩、テトラプロピルアンモニウム塩、テトラブチルアンモニウム塩などの四級アルキルアンモニウム塩及びアミン類から選ばれた少なくとも一種である請求項6又は7記載の結晶性層状化合物の製造方法。

[9] (補正後) 化学組成(結晶の構造組成)が $[(Si_{36-x}T_y \cdot O_{72}) \cdot M_z]$ (式中、MはLi、Na、K、Rb等のアルカリ金属陽イオン、Tは骨格置換元素としてAl、Ga、Fe、Ce原子を表し、 x は $0 \leq x \leq 3.0$ 、 y は $0 \leq y \leq 1.0$ 、 z は $0 \leq z \leq 3.0$ の範囲を表す。)で表され、Si原子とO原子の共有結合からなる微細孔構造を有することを特徴とするゼオライト。

[10] (補正後) 粉末X線回折パターンにおける格子面間隔 d (Å)が少なくとも下記表2又は表3に記載されたものである請求項9記載のゼオライト。

表2

| d (Å) | 相対強度 |
|-----------------|------|
| 9.17 ± 0.05 | 100 |
| 6.86 ± 0.05 | 35 |
| 6.11 ± 0.05 | 5 |
| 5.50 ± 0.05 | 4 |
| 4.84 ± 0.05 | 1 |
| 4.70 ± 0.05 | 1 |
| 4.58 ± 0.05 | 3 |
| 4.44 ± 0.05 | 7 |
| 4.35 ± 0.05 | 7 |
| 4.09 ± 0.05 | 6 |
| 3.88 ± 0.05 | 8 |

| | |
|-----------------|---|
| 2.89 ± 0.05 | 2 |
| 2.75 ± 0.05 | 1 |
| 2.37 ± 0.05 | 2 |
| 1.97 ± 0.05 | 2 |
| 1.86 ± 0.05 | 2 |

- [11] (補正) 結晶の格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 $Pnma$)、格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 $Pnnm$)、格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 14.74 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 $Pbcm$)、又は格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ 、 $\beta = 90 \pm 0.3^\circ$ の範囲にある単斜晶型 (空間群 $P21/m$) で結晶構造が記載可能な請求項 9 記載のゼオライト。
- [12] 骨格構造内における Si 原子周りの O 原子の局所配位が 4 配位から構成される請求項 9 記載のゼオライト。
- [13] Si 原子と O 原子の結合により構成される骨格構造が規則的な幾何学性を有する請求項 9 記載のゼオライト。
- [14] ガス吸着による平均細孔径が 0.48 nm 以上の細孔を有する請求項 9 記載のゼオライト。
- [15] (補正) 請求項 1 記載の結晶性層状化合物又は骨格置換元素含有結晶性層状化合物を脱水重縮合することにより、化学組成が $[(Si_{36-x}T_y \cdot O_{72}) \cdot M_z]$ (式中、M は Li, Na, K, Rb 等のアルカリ金属陽イオン、T は骨格置換元素として Al, Ga, Fe, Ce 原子を表し、 x は $0 \leq x \leq 3.0$ 、 y は $0 \leq y \leq 1.0$ 、 z は $0 \leq z \leq 3.0$ の範囲を表す。) で表されるゼオライトを合成することを特徴とするゼオライトの製造方法。
- [16] 脱水重縮合させる条件として、 $1 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^{-8} \text{ torr}$ の範囲における真空下にて製造される請求項 15 記載のゼオライトの製造方法。
- [17] 脱水重縮合させる加熱温度が $400 \sim 800^\circ\text{C}$ である請求項 15 記載のゼオライトの製造方法。

- [18] 脱水重縮合させる条件として、大気圧中で製造される請求項 15 記載のゼオライトの製造方法。
- [19] 脱水重縮合させる加熱温度が 300～800℃である請求項 15 記載のゼオライトの製造方法。
- [20] 加熱昇温温度が毎分 0.5～50℃である請求項 15 記載のゼオライトの製造方法。
- [21] 沸騰分子状の酸素分子を含んだ支燃性ガスの流通条件で脱水重縮合を行う請求項 15 記載のゼオライトの製造方法。
- [22] 請求項 9 から 14 のいずれかに記載のゼオライトからなることを特徴とする触媒又は分離・吸着用部材。
- [23] 化学組成が $[(Si_{36-x} \cdot O_{72}) \cdot M_y]$ (式中、M は Na、K、Li 等のアルカリ金属陽イオンを表し、 x は $0 \leq x \leq 3.0$ 、 y は $0 \leq y \leq 3.0$ の範囲を表す。) で表され、Si 原子と O 原子との共有結合からなる細孔構造を有し、Si-O の 4 面体配位の繰り返し単位がシリケート構造を持ち、ケイ素 5 員環及び 8 員環を含んだ幾何学的結晶構造 (原子配列) をもつゼオライト (CDS-1) を支持体上に製膜したことを特徴とするゼオライト膜。
- [24] 上記結晶構造において、
- (1) 結晶の格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 Pnma)、
 - (2) 結晶の格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 Pnnm)、
 - (3) 結晶の格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 14.74 \pm 0.03 \text{ \AA}$ の範囲にある斜方晶型 (空間群 Pbcm)、及び、
 - (4) 結晶の格子定数が $a = 18.35 \pm 0.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 13.77 \pm 0.03$ 、 $c = 7.37 \pm 0.03 \text{ \AA}$ 、 $\beta = 90 \pm 0.3^\circ$ の範囲にある単斜晶型 ($P21/m$)、
- である請求項 23 記載のゼオライト膜。
- [25] 粉末 X 線回折パターンにおける格子面間隔 d (Å) が少なくとも表 4 又は表 5 に記載されたものである請求項 23 記載のゼオライト膜。